

여과-투과 방법에 의한 케이크 여과의 전체적인 해석

임성삼[†] · 송연민

인하대학교 환경공학과

(2006년 11월 22일 접수, 2007년 1월 3일 채택)

Study on the Total Analyses of Cake Filtration with Filtration-Permeation Method

Sung Sam Yim[†] · Yun Min Song

Department of Environmental Engineering, Inha University

ABSTRACT : Using the new experimental method named “filtration-permeation”, the average specific resistances which plays an important role in designing cake filtration apparatus and the development of cake filtration theory were measured in this study. By this new experimental method, two kinds of average specific resistances are measured. The one from the filtration is named ‘filtration average specific resistance $\alpha_{av,f}$ ’, and the other from the permeation of particle eliminated water through the pre-formed cake is named ‘permeation average specific resistance $\alpha_{av,p}$ ’. The “filtration-permeation” method is applied to three different kind of suspensions(i.e. particulate suspension, pre-flocculated suspension and macro-molecule suspension) to obtain filtration and permeation average specific resistances. A theoretical procedure of cake filtration is studied based on the values of permeation average specific resistance. With the study it was concluded that the influence of the sedimentation during particulate filtration operation could not be ignored as commonly used. And the solid content of suspension, S, which also regarded usually as constant, changes during filtration of particles. It is also verified that the exact value of solid content of cake for floc filtration could not be obtained. These significant problems are all solved by our new “filtration-permeation” experimental method.

Key Words : Cake Filtration, Filtration with Sedimentation, Filtration of Particulate Suspension, Floc Filtration, Filtration of Suspended Polymer, Filtration-Permeation

요약 : 본 연구에서는 케이크 여과 장치의 설계와 케이크 여과 이론의 전개에 가장 큰 역할을 하는 평균 비저항값을 새로운 여과 실험방법인 “여과-투과(filtration-permeation) 실험방법”에 의해 측정하였다. 과거부터 사용되어온 전형적인 여과 실험방법에 의해 측정되는 평균 비저항값을 여과 평균 비저항 $\alpha_{av,f}$ 이라 하고, 이미 형성된 케이크에 입자 제거수를 첨가하여 측정된 평균 비저항값을 투과 평균 비저항 $\alpha_{av,p}$ 이라 하였다. 서로 다른 세 가지 현탁액(입자 현탁액, 응집 현탁액, 고분자 현탁액)에 대해서 “여과-투과 실험방법”으로 케이크 여과를 수행하여 여과기간의 평균 비저항값과 투과기간의 평균 비저항값을 계산하였다. 또한 투과기간의 평균 비저항값을 기준으로 이론적인 여과과정이 연구되었다. 이 연구결과 입자 여과 조작에서 침전의 영향이 무시될 수 없다는 것이 밝혀졌다. 통상적으로는 침전을 무시하고 있다. 또한 입자 여과과정에서 일정하다고 간주되고 있는 현탁액의 고체분율 S도 변화한다. 통상적인 플러의 여과과정에서는 케이크 내의 고체분율, S_c의 값을 정확히 알기 어렵다는 것을 보였다. 이런 중요한 여러 문제점이 “여과-투과 실험방법”을 통해서 모두 해결 된다는 것을 보였다.

주제어 : 케이크 여과, 침전이 수반된 여과, 입자 현탁액 여과, 고분자 현탁액 여과, 여과-투과

1. 서 론

케이크 여과와 관련된 이론은 1856년 Darcy¹⁾의 모래층을 통과하는 유체의 흐름 방정식으로부터 시작되었다. 이후 1917년 Sperry²⁾는 현재 여과 이론에서 사용되고 있는 parabolic equation의 근원인 여과시간과 여액부피 곡선이 포물선 형태인 것을 실험으로 증명하였다. 1930년 경 Ruth^{3,4)}는 여과 시간과 여액부피 곡선이 포물선형임을 Darcy의 수식을 통하여 다시 한번 확인하였으며, 케이크의 두께 개념을 사용해

오던 수식 대신 현재 여과 이론에서 사용되고 있는 질량 개념의 수식을 처음으로 도입하였다. 또한 여과에 의해 미리 형성된 케이크에 순수한 물을 통과시키는 실험을 수행하여 다음과 같은 결과를 얻었다. 즉, 이론적으로는 여과실험을 수행하는 가장 손쉬운 방법인 반면에 이 방법이 실제적으로는 여하한 여과 거동에 대하여도 유효한 측정 방법이 아니라고 하였다. 이는 실제적으로 여과-투과 방법의 적용에 실패한 것으로 볼 수 있으며, 그 이유는 여과기간 동안 침전현상으로 여과기간과 투과기간의 비저항값이 상당히 다르기 때문으로 사료된다. 여과실험 진행 도중 발생하는 침전이 여과 성질을 측정하는 데 영향을 준다는 것은 여과 이론이 정립되기 전부터 Sperry²⁾에 의해 밝혀진 바 있으며, Yim^{5,6)}도 비저항값의 측정에 영향을 준다고 제안하였다.

[†] Corresponding author
E-mail: yimsungsam@inha.ac.kr
Tel: 032-860-7504 Fax: 032-860-7504

압축-투과 실험장치(compression-permeability cell; CPC)는 Ruth⁷⁾에 의해 개발된 이후 과거 60년간 케이크 여과를 분석하는 가장 중요한 수단으로 사용되었으며, 이때부터 현대 여과이론이 시작되었다. 즉, Ruth는 이 압축-투과 실험장치(CPC)를 사용하여 처음으로 여러 압력에서 동일한 공간율(ϵ)을 가진 케이크를 만들어 여과 비저항(α)을 측정함으로써, 케이크 내에서 일어나는 내부 현상을 이론적으로 연구할 수 있는 기반은 마련하였으나 직접적인 정보를 제공하지는 못하였다. Okamura와 Shirato⁸⁾는 이 문제를 케이크 내부의 압력분포를 직접 측정하여 해결하려 시도하였고, Rietema⁹⁾는 전기 전도도를 사용하여 공간율의 변화를 측정하였다. 여과 현상을 연구하기 위하여 개발된 위의 여러 실험방법들은 각기 단점을 가지고 있다. 즉, CPC실험은 여과 실험과 직접 결부되지 않아 해석에 어려움이 있으며, 실험기간이 오래 걸리고 숙련된 실험자가 아니면 결과에 재현성이 적어 현재 널리 인용되고 있는 실험결과는 Grace¹⁰⁾의 것뿐이다. 그 밖의 실험들은 여과를 진행시키면서 수행할 수 있는 장점이 있으나 여과가 진행됨에 따라 케이크의 양이 많아지고 그 결과 여과속도가 매우 늦어지게 되어 실험이 거의 불가능해진다.

본 연구에서는 위에 열거된 실험방법의 단점을 보완하기 위해 제안된 Yim과 Ben Aim¹¹⁾의 “여과투과 실험방법”으로 케이크 여과를 수행하였다. 실험에 사용된 현탁액은 입자여과를 위한 탄산칼슘 현탁액, 플럭(floc)여과를 위한 벤토나이트 현탁액을 응집시킨 후의 침전물 마지막으로 고분자 여과를 위한 양이온 고분자 응집제 현탁액이다. 이 세 가지 현탁액에 대한 여과-투과 실험을 수행하여 여과 평균 비저항값과 투과 평균 비저항값을 측정하여 비교 분석하였다.

2. 문헌연구

2.1. 케이크 여과(cake filtration) 이론

케이크 여과란, 여과 조작용 여과매체 표면에 형성되는 입자층인 케이크에 의해서 행해지는 것을 말한다. 이러한 케이크 여과 현상의 분석에는 흔히 Darcy의 공식이라고 불리는 식 (1)을 사용한다.

$$v_o = \frac{dV}{dt} = \frac{\Delta p_c}{\mu \alpha_m W} \quad (1)$$

여기서, V 는 여과 단위 면적당 여액의 부피(m^3/m^2), t 는 여과시간(sec), Δp_c 는 케이크 양쪽 면의 압력 차이(Pa), μ 는 여액의 점도($kg/m \cdot s$), α_m 는 여과 평균 비저항(m/kg), W 는 여과 단위 면적당 케이크의 질량(kg/m^2)이다. 이 식은 Darcy¹⁾가 발표한 초기의 식과 완전히 동일하지는 않으나 Darcy의 개념이 모두 포함되어 있으므로 여과에서는 흔히 이 식 (1)을 Darcy의 공식이라고 부른다.

이 식 (1)은 엄밀히 말해 케이크의 저항만을 고려해 준 식이다. 식 (1)에서 단위 시간당 단위 면적당 여액의 부피, $v_o (= dV/dt)$ 는 케이크의 공간을 통해 빠져 나오는 여액의 속

도를 측정할 값이므로 케이크와 여과매체를 빠져 나온 후의 여액의 속도이다.

1964년 Tiller와 Shirato¹²⁾가 함께 연구한 논문에서는 v_o 의 개념을 잘못 해석하여 케이크 내부의 액체의 속도라고 생각하였다. 그 결과 압축성 케이크에서는 내부의 흐름이 일정하지 않고 변화함으로 여과 평균 비저항값을 다시 정의해야 한다는 결론에 이르렀다. 이는 기본적인 개념을 도외시한 결과 발생한 잘못이었다. 그러므로 여과에 적용되는 전체 압력 Δp 는 케이크에서의 저항과 여과매체에서의 저항을 고려하여 다음과 같이 나타낼 수 있다.

$$\Delta p = \Delta p_c + \Delta p_m = \alpha_m v_o W + R_m v_o \quad (2)$$

여기서, R_m 은 여과매체의 저항(m^{-1})이다. 이를 v_o 에 대해 다시 정리하면 다음과 같다.

$$v_o = \frac{dV}{dt} = \frac{\Delta p}{\mu(\alpha_m W + R_m)} \quad (3)$$

여과가 시작되는 순간에는 여과매체 위에 케이크가 형성되지 않았으므로 식 (3)에서 단위 면적당 케이크의 질량 W 는 존재하지 않게 된다. 이 순간 이후 즉, 여과조작이 진행되는 기간에는 여과 단위 면적당 케이크의 질량 W 값이 증가함으로 이에 대한 물질수지를 단위 면적당 케이크의 질량으로 나타내면 다음과 같이 나타낼 수 있다.

현탁액 전체의 질량 = 케이크의 질량 + 여액의 질량

$$\frac{W}{S} = \frac{W}{S_c} + \rho V \quad (4)$$

여기서, ρ 는 여액의 밀도(kg/m^3), S 는 여과 대상 현탁액 내의 고체분율, S_c 는 여과 케이크 내의 고체분율이다.

식 (4)를 여과 단위 면적당 케이크의 질량, W 에 대해 정리하면,

$$W = \frac{\rho S}{1 - S/S_c} V \quad (5)$$

이 되고, $W = CV$ 라 정의하면 여액 부피당 형성되는 여과 케이크의 질량, C 는 다음과 같이 표현된다.

$$C = \frac{W}{V} = \frac{\rho S}{1 - S/S_c} \quad (6)$$

여과가 진행되는 동안 여액의 밀도 ρ 가 변화하는 경우는 드물므로 C 는 여과 대상 현탁액 내의 고체분율 S 와 케이크 내의 고체분율 S_c 에 의해 결정된다. 이 관계를 식 (3)에 대입하면 흔히 Ruth의 식이라고 부르는 식 (7)이 된다.

$$v_o = \frac{dV}{dt} = \frac{\Delta p}{\mu(\alpha_m CV + R_m)} \quad (7)$$

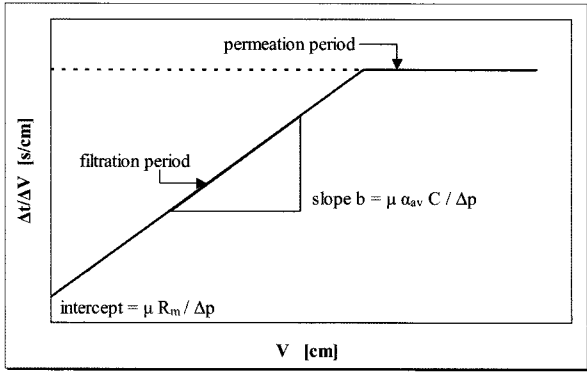


Fig. 1. Theoretical result of a filtration-permeation experiment.

이 식을 역으로 놓고 정리하면, 다음의 식이 된다.

$$\frac{dt}{dV} = \frac{\Delta t}{\Delta V} = \frac{\mu \alpha_{av} C}{\Delta p} V + \frac{\mu}{\Delta p} R_m \quad (8)$$

식 (8)에 의해 여과 평균 비저항값을 다음과 같이 구한다. 여과실험을 통하여 여과시간에 따른 여액의 부피를 정밀하게 측정하여 각 구간의 $\Delta t/\Delta V$ 를 계산하고, 각 구간의 평균 V값을 계산하여 그래프를 그린다. 응집물 여과 또는 여과 도중 침전속도가 매우 빠른 경우가 아니면 실험결과는 대부분 직선을 잘 나타낸다. 이 결과를 Fig. 1에 나타내었다.

식 (8)에 의하면 Fig. 1의 직선 기울기 b는 $\mu \alpha_{av} C / \Delta p$ 를 나타낸다. 그러므로 여과실험에서 구한 기울기 b와 점도 μ , C 그리고 여과 압력값을 사용하여 여과 평균 비저항값 α_{av} 을 구할 수 있다. 이 여과 평균 비저항 측정방법은 거의 80년에 걸쳐 변함없이 사용되고 있다. 그러나 Yim⁵⁾은 여과 도중 여과 대상액에 침전이 일어나는 경우 이 방법을 사용할 수 없다는 것을 밝혔다. 식 (8)의 마지막 항이 Fig. 1의 실험 결과를 외연장하여 y축과 만나는 절편값이 된다. 즉 절편값은 $\mu R_m / \Delta p$ 여서 여액의 점도와 여과 압력값을 사용하여 R_m 을 구할 수 있다. 이 방법 또한 80년 이상 사용되고 있으나 Yim 등⁶⁾은 이 방법에 대한 문제점을 제시하는 논문을 발표하였다.

2.2. 여과-투과(filtration-permeation) 이론

‘여과-투과(filtration-permeation)’ 실험방법은 여과 케이크의 특성을 연구하기 위하여 Yim과 Ben Aim¹¹⁾이 개발한 새로운 실험방법이다. 이 방법은 보통의 여과를 수행하여 여과 케이크를 형성시키고, 형성된 케이크에 입자 제거수(particle removed water)를 통과시켜 투과속도를 측정하는 방법이다. 투과기간 중에는 케이크의 질량(W)이 일정하게 유지되고, 여과 매체의 저항인 R_m 값이 여과 케이크의 저항에 비하여 1/100~1/1000 정도로 작으므로 R_m 값을 생략하면 다음과 같은 식을 얻을 수 있다.

$$\frac{dV}{dt} = \frac{\Delta p}{\mu \alpha_{av} W} \quad (9)$$

Table. 1. Advantage of “filtration-permeation” technique

Problem of filtration period	Advantage of filtration-permeation
Cake filtration with sedimentation	⇒ Specific cake resistance can be measured
Large flow rate at initial period	⇒ Reducing the filtration-permeation cell diameter
Effect of filter medium resistance in cake filtration	⇒ Filter medium resistance can be measured

투과기간은 이미 형성된 케이크에 입자 제거수를 통과시키는 기간이므로 물의 투과속도 $\Delta t/\Delta V$ 는 이론적으로 일정값을 유지해야 한다. 이 일정한 값과 여과 후 측정된 여과 단위 면적당 케이크의 질량(W), 투과 압력(Δp), 액체의 점도(μ)를 식 (9)에 대입하여 투과기간의 평균 비저항값 $\alpha_{av,p}$ 을 쉽게 계산할 수 있다.

본 연구에서 수행한 여과-투과 실험방법이 기존의 여과 실험방법과 비교하여 얻을 수 있는 이점을 Table 1에 나타내었다.

Table 1은 여과기간에 발생할 수 있는 문제점을 Yim과 Ben Aim¹¹⁾에 의해 제시되어 본 연구에서 수행한 여과-투과 실험방법으로 해결할 수 있는 것을 나열한 것이다. 첫째, 여과 실험만을 수행한 경우 여과기간에 발생하는 침전, 혹은 여과가 시작되기 전에 존재할 수 있는 사전(事前) 침전 등의 영향을 벗어날 수 있다. 즉, 여과-투과 실험을 통하여 투과기간에서 얻은 투과속도를 가지고 평균 비저항값을 계산하여 정확한 비저항 측정을 할 수 있게 된다. 두 번째로 여과 초기기간의 빠른 유속 변화로 인하여 초기기간의 측정이 불가능하였다. 그러나 여과 셀(cell) 직경의 크기를 작게 하여 여과-투과 실험을 수행하면 여과 초기기간을 측정할 수 있다. 그리고 마지막으로 케이크 여과를 수행할 때 영향을 미치는 여과매체의 저항값을 정확히 측정할 수 있게 된다.

3. 실험방법

3.1. 여과 실험장치

3.1.1. 감압 여과장치

여과실험에 많이 사용하는 통상적인 Büchner funnel에 다음의 두 부분을 변형시켜서 사용하였다. 대부분의 여과 셀(filtration cell)은 동일 높이에서 많은 양의 현탁액을 담기 위해 여과매체의 약간 윗부분이 여과면적보다 넓게 되어 있다. 그러나 이 넓어지는 부분에 침전된 입자가 쌓이므로 이를 방지하기 위해 여과매체와 동일한 원기둥형의 여과 셀을 제작하여 사용하였다. 여과 셀의 직경은 4 cm, 높이는 16 cm로 200 cm³의 현탁액을 담을 수 있다. Fig. 2는 실험에서 사용한 감압식 여과장치이다.

여과도중 감압을 위한 아스피레이터(aspirator)에 의한 압력의 요동을 방지하기 위해 여과기와 아스피레이터 사이에 40 L 공기탱크를 설치하였다. 여과를 시작하기 전 여과기와 공기탱크 사이의 밸브를 잠그고 아스피레이터를 가동시켜 공기탱크의 절대압력을 0.5 기압보다 조금 더 낮게 한다. 그 후 아스피레이터와 공기탱크 사이의 밸브를 잠그며 아스피레이터를 정지시킨다.

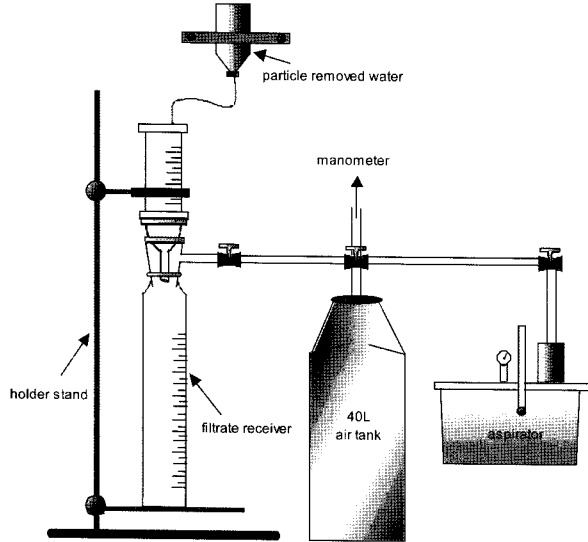


Fig. 2. Schematic diagram of a vacuum filtration apparatus.

현탁액을 여과 셀에 넣고 동시에 여과기와 공기탱크 사이의 밸브를 열어 여과를 시작한다. 여과는 공기탱크의 감압으로 진행된다. 그러므로 여과 도중 압력의 요동은 없다. 통상적으로 200 cm³의 여과와 200 cm³의 투과를 수행하였으므로 실험이 끝나면 400 cm³의 부피가 증가한 셈이 된다. 공기탱크의 용량이 40,000 cm³이고 여액 수기의 부피가 400 cm³이므로 늘어난 여액으로 인한 압력차의 감소는 약 1%가 된다. 이 범위 내에서는 정압(定壓)이 이루어지지 않는 셈이나 압력의 요동을 막기 위해 이 방법을 사용하였다.

투과를 위한 입자 제거수는 여과 셀의 윗 부분에서 여과가 80% 정도 진행된 후부터 케이크를 다치지 않도록 조심스럽게 첨가하였다.

3.1.2. 가압식 여과장치

Fig. 3과 같이 여과 셀을 밀봉하여 가압할 수 있게 제작하였다. 현탁액을 넣고 위의 마개를 닫고 밀봉하는 데는 1~2분이 걸렸으나, 항상 동일한 조건을 유지하기 위해 현탁액을 넣은 2분 후에 여과를 시작하였다.

여과만 수행할 경우는 여과 셀 상부의 연결부위에 원하는 압력의 질소를 연결시켜 여과를 수행하였다. 봄베에 들어있는 고압의 질소를 원하는 압력으로 감압시키는 감압장치를 사용하여 원하는 압력을 만들었다. 보통의 감압장치는 여과 셀의 압력이 설정시켜 놓은 압력보다 약간 낮은 압력이 되어야 기체를 더 공급한다. 이런 장치에서는 여과 도중 압력이 낮아졌다가 높아지는 과정이 반복된다.

여과-투과를 수행할 경우 투과를 위한 입자 제거수를 미리 400 cm³의 빈 용기에 넣어 여과기와 질소 봄베 사이에 설치하였다. 여과기와 물이 든 용기 사이의 연결관에도 입자 제거수를 채워 놓았다. 압력은 입자 제거수가 들어있는 용기에 공급된다. 여과가 진행되면서 나간 여액만큼의 입자 제거수가 여과 셀에 공급이 되어 자연적으로 여과-투과가 연이어 진행된다. 이 장치는 주로 응집물의 여과에서 사용하였다. Fig. 3에 이 장치의 개요를 나타내었다.

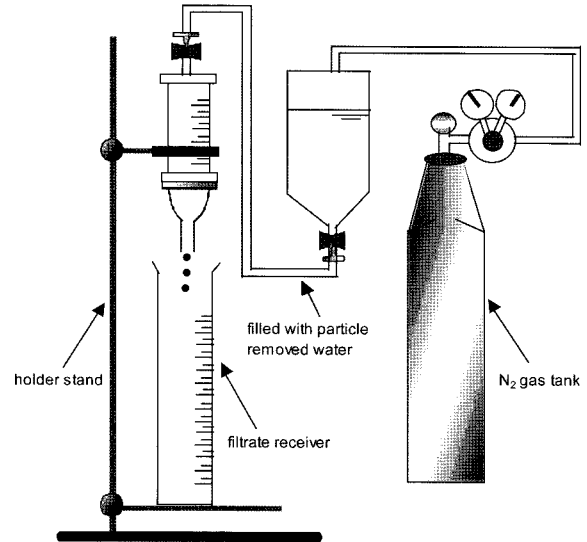


Fig. 3. Schematic diagram of pressure filtration apparatus.

3.2. 여과매체의 시료

여과매체는 Advantec 東洋濾紙株式會社(일본)에서 제조된 Advantec Toyo 5C, 미국의 Micro filtration system사의 polysulfone재질의 MF막, 그리고 프랑스의 Sartorius사에서 제조한 공극 직경 8 μm 여과막을 사용하였다. Sartorius사의 제품은 응집 침전물의 여과에만 사용하였다.

첫 번째 입자 여과 대상 물질로는 Jin chemical사(한국)에서 제조한 탄산칼슘을 사용하였다. 이 탄산칼슘을 Malvern 회사의 Mastersizer를 사용하여 입도 분석한 결과 전체 구성 입자가 부피 평균 입자 크기로 0.3~50 μm 사이에 분포하고 있었다. 이 범위 내에서는 어느 특정 크기의 입자가 많은 분포를 차지하는 것이 아니라 전반적으로 넓게 분포되어 있으며, 평균 입자경은 8.54 μm이었으며, 1 μm 이하의 크기를 가지는 입자는 10% 정도였다.

두 번째로 플럭(floc) 여과 대상 물질로는 bentonite 입자 현탁액에 양이온 응집제 Cyanamid Superfolc(Superfloc) C 581을 주입하여 생성된 플럭을 사용하였다. 이 벤토나이트 volclay는 American Colloid Company 제품으로 자기 중량의 12~15배의 물을 흡수하여 Coulter counter에 의해 19.3 μm보다 큰 것이 33.4%, 12.1보다 큰 것이 52.9%, 7.63보다 큰 것이 72.3%, 4.81보다 큰 것이 85.3%로 나타났다. 응집제인 양이온 응집제 Cyanamid Superfolc(Superfloc) C 581은 분자량이 10⁵~10⁶ g/mol로 고분자 응집제로는 분자량이 작은 편이다.

마지막으로 고분자 여과 대상 물질로는 (주)이양화학에서 제조된 양이온 고분자 응집제 YCX-452를 사용하였다. 이 양이온 고분자 응집제의 평균 분자량은 5,000,000이다.

4. 결과 및 고찰

4.1. 입자 현탁액의 여과-투과 실험결과

4.1.1. 1 wt% 탄산칼슘 현탁액의 여과-투과 실험결과

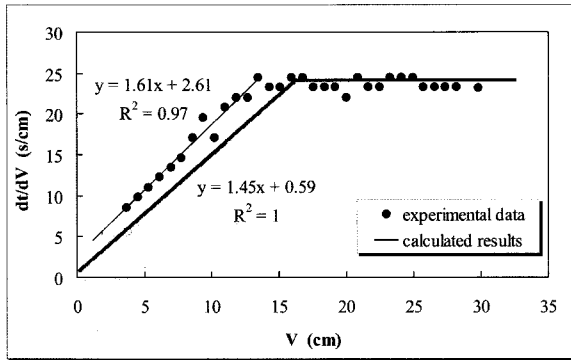


Fig. 4. Filtration-permeation results of 1 wt% CaCO₃ suspension with 0.45 μm MF at 0.5 atm.

1 wt%인 탄산칼슘 현탁액을 여과매체 0.45 μm MF을 사용하여 여과 압력 0.5 atm에서 여과-투과 실험을 수행하였다. 그 결과를 Fig. 4에 검은색 점으로 나타내었다.

Fig. 4에서 기울기를 가진 직선 부분의 점들이 여과기간의 실험결과이다. 통상적인 방법으로는 여과 부분의 기울기(이 곳에서는 1.61 s/cm²)와 초기 현탁액의 고체분율(S는 0.01)을 사용하여 식 (8)로 여과 평균 비저항값 α_{av,f}를 계산한다. 계산결과 α_{av,f}값은 8.26×10¹⁰ m/kg이었다. Fig. 4에 x축에 평행한 점들이 투과기간의 실험결과이며, 이 투과기간의 Δt/ΔV 평균값(x축에 평행한 굵은 선)과 투과기간에 변하지 않는 케이크의 질량 W를 사용하여 식 (9)를 사용하여 투과기간의 평균 비저항값 α_{av,p}를 계산할 수 있다. 계산 결과 α_{av,p}값은 7.46×10¹⁰ m/kg이었다. 투과기간의 평균 비저항값 α_{av,p}을 기준으로 할 경우 α_{av,f}와 α_{av,p}의 차이는 10.7%이다. 이는 여과 도중 발생하는 현탁액의 침전으로 인한 오차이다.¹²⁾ 그러나 여과실험의 특성상 실험 오차의 범위에 들어갈 수 있는 값이다.

이론적인 분석을 위하여 투과기간의 평균 비저항값 α_{av,p}을 사용하여 여과과정을 계산한 결과를 굵은 선으로 Fig. 4에 함께 나타내었다. 원점 근처에서 시작하여 Δt/ΔV의 값이 직선적으로 증가하는 굵은 선이 여과기간의 계산 결과이며, 이 선은 침전이 없는 경우의 여과 현상을 모식화 한 것으로 여기서의 기울기 값 1.45 s/cm²으로 계산한 여과 평균 비저항값은 투과기간의 평균 비저항값과 같게 된다. 여과실험 도중 침전이 발생할 경우는 그렇지 않는 경우에 비해서 여과기간의 기울기 값이 더 크게 된다.

여과실험 도중 침전여부에 따른 여과기간의 평균 비저항값과 투과기간의 평균 비저항값의 차이를 보다 분명히 분석하기 위하여 다음 절에 침전을 배제한 여과-투과 실험결과를 나타내었다.

4.1.2. 침전물의 여과-투과 실험결과

Fig. 5는 초기 농도 17.6 wt%인 탄산칼슘 현탁액을 여과 조작을 수행하지 않고 여과 셀 안에서 40분 동안 침전시킨 후에 여과 압력 0.5 atm에서 여과-투과 실험을 수행한 결과이다. 여과 셀 안에서 현탁액의 침전 종료에는 30분이 소요되었으나 확실한 침전을 위하여 시간을 10분 더 증가시켰다. 이 때 형성된 침전물의 두께는 3.9 cm이었다. 이 두께에

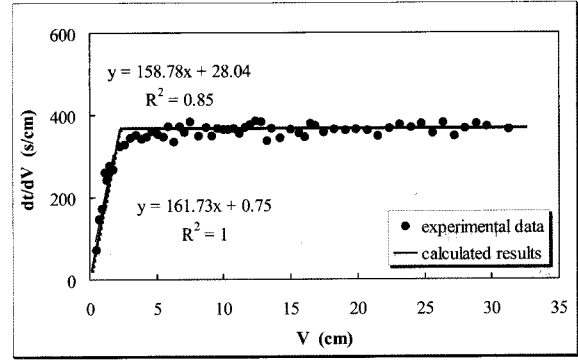


Fig. 5. Filtration-permeation of the sediment(48.8 wt% CaCO₃) prepared with the suspension of 17.6 wt% initial concentration.

서부터 계산된 침전물의 고체분율 S값은 0.488(48.8 wt%)로 초기 현탁액 내의 고체분율 0.176에 비해 2.8배 농축되었다.

Fig. 5도 Fig. 4에서와 마찬가지로 여과-투과 실험결과는 검은색 점으로, x축에 평행한 굵은 선으로 표시된 투과기간의 Δt/ΔV의 평균값으로 계산한 투과 평균 비저항값 α_{av,p}을 기준으로 계산한 이론적인 여과과정 결과는 굵은 선으로 나타내었다.

Fig. 5에서 여과기간에 케이크로 들어가는 물질은 침전물 이므로 S값은 0.488이 되어야 하며, 초기의 현탁액 내의 고체분율 0.176은 의미가 없다. 투과기간의 Δt/ΔV의 평균값은 366.76 s/cm, W값 28.6 kg/m²을 식 (9)에 사용하여 투과기간의 평균 비저항값 α_{av,p}를 계산하면 7.16×10¹⁰ m/kg이다. 여과기간의 기울기 158.78 s/cm², 케이크 내의 고체분율 S_c값 0.796, 그리고 여과기간의 침전물 내의 고체분율 S값 0.488을 식 (8)에 대입하여 계산한 여과 평균 비저항값 α_{av,f}는 7.03×10¹⁰ m/kg이다. 이 두 가지 평균 비저항값이 여과-투과 실험값으로는 매우 잘 일치한 것이다. 만일 초기 현탁액의 농도에서 S값인 0.176을 대입하여 계산한 여과 평균 비저항값은 3.93×10¹¹ m/kg으로 상당한 차이가 있다. 이 결과는 여과 도중 침전을 배제한 경우 여과 평균 비저항값과 투과 평균 비저항값이 서로 일치함을 보여줌과 동시에 현탁액 내의 고체분율 S값의 선정도 중요함을 보여주는 실험결과이다. 이에 대한 자세한 분석은 이미 Yim등⁶⁾에 의해 분석되어진 바 있다. 결과적으로 초기 현탁액의 농도가 상당히 높을 경우 통상적인 여과실험만 수행하여 여과 평균 비저항값을 계산할 경우에는 상당한 오차를 유발할 수 있으며, 이렇게 잘못 계산된 비저항값은 일반적인 화학공업 또는 환경공학 분야에서 여과과정 이후 실시하게 될 압착공정의 설계 및 운전 등에 상당한 문제점을 유발할 수 있다.

4.2. 응집물(floc)의 여과-투과 실험결과

벤토나이트 현탁액을 양이온 응집제를 사용하여 자 테스터(jar tester)에서 130 rpm, 1분의 급속교반과 60 rpm, 15분의 완속교반을 수행하였다. 응집 후 10분간 침전시켜 상등액을 조심스럽게 제거하고 남은 침전물을 여과압력 1 atm에서 전형적인 여과실험한 결과를 Fig. 6에 나타내었다.

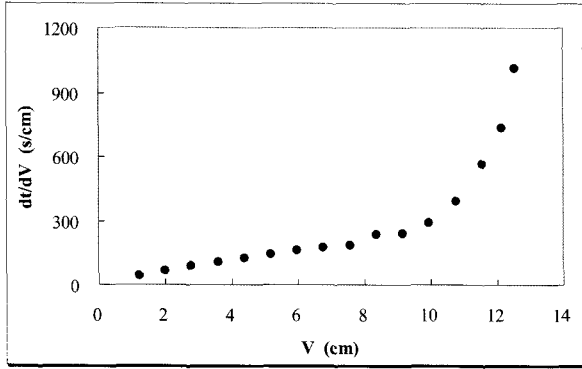


Fig. 6. Filtration of bentonite floc flocculated with cationic flocculant at 1 atm.

Fig. 6을 살펴보면, 여과 단위 면적당 여액의 부피, V가 10 cm까지는 $\Delta t/\Delta V$ 가 서서히 증가하며, 이 10 cm 이후부터는 급속히 증가함을 볼 수 있다. 이는 초기 침전물이 여과에 의해 점차로 케이크로 변화하며, 모든 침전물이 케이크로 변화하면 케이크의 압착과정이 연이어서 진행됨을 보여주는 전형적인 여과-압착 그래프이다. 그러므로 여과 셀의 외부에서 침전물의 높이 변화를 관찰하는 것으로는 여과 과정과 압착과정의 구분이 불가능하다. 그 결과 여과 도중 배출된 여액양에 해당하는 케이크의 양을 결정지을 수 없다.

본 연구에서는 Fig. 3과 같이 가압식 여과장치에 입자 제거수를 채운통을 연결하고, 이 통의 입자 제거수에 압력을 가해 여과와 투과를 수행하였다. 이것이 여과-투과 실험이며, 그 결과를 Fig. 7에 나타내었다. 즉, 침전물이 여과에 의해 케이크로 변화되면 여과가 종료되기 약 20%전에 입자 제거수를 연속적으로 여과 셀에 가해 주어서 여과 후에 바로 연이어 압착이 시작되는 것을 방지하였다. 이 때 형성된 케이크의 두께에서 케이크의 부피, 질량 그리고 이 상태의 케이크에 대한 투과속도를 실험적으로 결정할 수 있다.

Fig. 7의 여과-투과 실험시 여과가 시작될 때의 여과 셀 속에 넣은 침전물의 높이는 14.7 cm이었으며, 여과가 종료된 후의 케이크의 두께는 7 cm이었다. 이 케이크 두께는 이후의 계속적인 투과에 의해서도 거의 변화하지 않았다. 이 값들로 계산한 여과 대상 응집 침전물 내의 고체분율 S는 0.022이

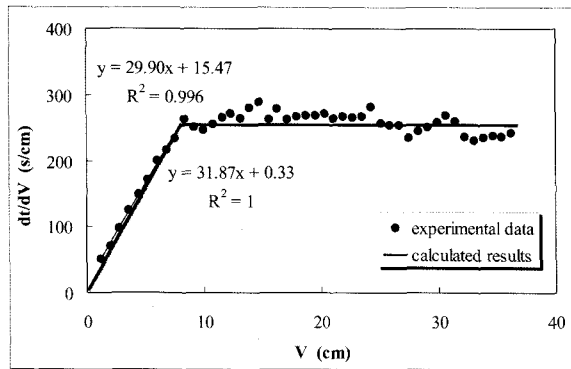


Fig. 7. Filtration-permeation of bentonite floc flocculated with cationic flocculant at 1 atm.

었고, 케이크 내의 고체분율 S_c 는 0.044이었다. 이 S와 S_c 값을 식 (6)에 대입하여 여액 부피당 형성되는 여과 케이크의 질량 C값을 계산하면 40 kg/m^3 이 된다.

Fig. 7에서 기울기를 가진 직선 부분의 점들이 여과기간의 실험결과이다. 이 기울기 29.90 s/cm^2 와 위에서 계산한 C값 ($= 40 \text{ kg/m}^3$)을 식 (8)에 대입하면 여과 평균 비저항값 $\alpha_{av,f}$ 을 얻을 수 있다. 또한 Fig. 7의 투과기간의 평균 투과속도 253.68 s/cm 와 투과기간에 변하지 않는 단위 면적당 케이크의 질량 W값 3.18 kg/m^2 을 식 (9)에 대입하면 투과 평균 비저항값 $\alpha_{av,p}$ 을 계산할 수 있다. 계산 결과 $\alpha_{av,f}$ 는 $7.57 \times 10^{11} \text{ m/kg}$ 이었고, $\alpha_{av,p}$ 는 $8.07 \times 10^{11} \text{ m/kg}$ 이었다. 두 평균 비저항값의 오차는 약 6.1%이다. 이는 실험 결과 오차 범위에 들어간다.

침전된 응집물을 여과한 현재 실험의 경우 여과에서 얻어지는 S/ S_c 값은 0.5로 1 wt% 탄산칼슘 현탁액 여과의 경우의 S/ S_c 값인 0.013에 비하면 매우 큰 값이다. 입자 현탁액의 여과에서는 식 (6)을 사용하여 여액 부피당 형성된 케이크의 질량 C를 구할 때 S/ S_c 값이 분모에 있고 1에 비해 상당히 작은 값이므로 통상적으로 생략하는 경우가 많다. 그러나 이 침전된 응집물의 여과에서는 S/ S_c 값을 생략하면 C값이 절반으로 계산이 되며, 그 결과 여과 평균 비저항값이 거의 두 배 틀리게 계산된다. 이를 보다 명확히 살펴보기 위하여 Fig. 7의 실험 결과 데이터와 S/ S_c 값을 생략하고 투과 평균 비저항값에 의해 계산된 이론적인 여과과정 모식도를 Fig. 8에 나타내었다.

Fig. 8에서 원점 근처에서 시작하여 $\Delta t/\Delta V$ 의 값이 직선적으로 증가하는 짧은 선이 이론적인 여과 과정 모식도이다. 이미 형성된 케이크에 입자 제거수를 첨가하여 투과속도를 측정하여 계산한 투과 평균 비저항값은 Fig. 7과 Fig. 8 모두 같은 값을 가지게 된다. 그런데 여과기간의 평균 비저항값은 Fig. 7과 비교하여 여과기간의 기울기에 차이가 있으므로 그 값도 차이가 나게 된다. 즉, 여과기간의 직선의 기울기 b는 식 (8)에 의해 $\mu\alpha_{av}C/\Delta p$ 로 계산되며, 여액 부피당 형성되는 여과 케이크의 질량, C는 식 (6)에 의해 $\rho S/(1-S/S_c)$ 로 계산된다. 따라서 이론적인 여과 모식도에서 S/ S_c 값을 생략하지 않고 계산한 Fig. 7과 비교하여 S/ S_c 값을 생략한

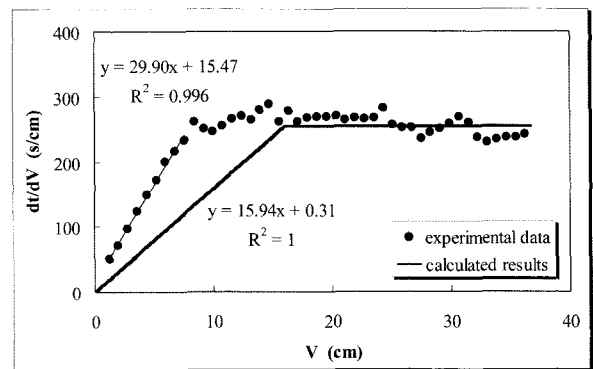


Fig. 8. Filtration-permeation of bentonite floc flocculated with cationic flocculant at 1 atm (without S/ S_c).

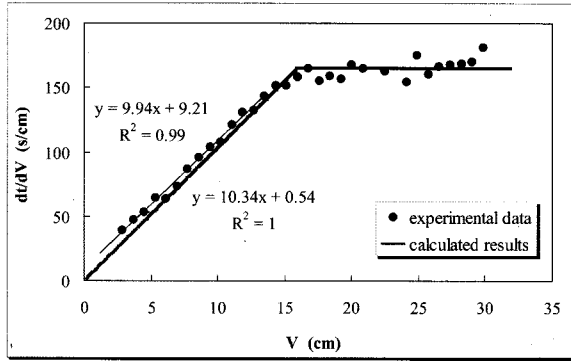


Fig. 9. Filtration-permeation of 1 ppm cation polymer suspension with 0.1 μm MF at 0.5 atm.

Fig. 8은 C값이 절반이 되고, 기울기는 C값과 비례관계에 있으므로 Fig. 7의 기울기 31.87 s/cm²에 비해 2배 작은값인 15.94 s/cm²가 된다. 이 여과기간의 기울기를 이용하여 계산한 여과 평균 비저항값 α_{av,f}은 1.51×10¹² m/kg으로 실제값보다 약 2배 증가하게 된다. 결과적으로 전형적인 여과 실험방법으로 계산한 여과 평균 비저항값으로만 여과 장치의 설계를 실시한다면, 여과공정 운전시 에너지 면에서도 비효율적이 되며 이후에 이어지는 압착공정 설계 및 운전에도 상당한 문제를 주게 된다.

4.3. 고분자 물질의 여과-투과 실험결과

4.3.1. 1 ppm 고분자 용액의 여과-투과 실험결과

고분자 물질의 여과-투과 실험을 수행하기 위하여 평균 분자량 5,000,000인 분말형태의 양이온 고분자 응집제를 먼저 0.01% 용액으로 만들었다. 이 용액을 1 ppm으로 희석하고 여과매체 0.1 μm MF를 사용하여 여과압력 0.5 atm에서 여과-투과 실험을 수행하였다. 그 결과를 Fig. 9에 나타내었다.

Fig. 9에서 검은색 점으로 표시된 부분은 여과-투과 실험결과이고, 붉은색 선으로 표시된 부분은 이론적인 분석을 위해 투과기간에서 구한 평균 비저항값을 사용하여 여과과정을 계산한 결과이다. Fig. 9의 기울기를 가진 직선의 부분이 여과기간을 나타내며, x축과 평행한 부분이 투과기간을 나타낸다. 실험을 통한 여과기간의 직선의 기울기와 이론적으로 계산한 여과과정이 비교적 잘 일치함을 볼 수 있다. 이 때 여과부분의 직선의 기울기 9.94 s/cm²에 의해 계산된 여과 평균 비저항값 α_{av,f}는 5.64×10¹¹ m/kg이었으며, 투과기간의 평균 Δt/ΔV는 164.58 s/cm로 이를 식 (9)에 대입하여 계산한 투과 평균 비저항값 α_{av,p}는 5.85×10¹¹ m/kg이었다. 두 값이 비교적 잘 일치함을 볼 수 있다. 이는 고분자 물질이 아주 작은 미립자의 물질로 볼 수 있으므로 여과 도중 침전의 영향을 볼 수 없다고 판단된다.

그러나 앞 절들의 입자 여과와 플럭 여과와는 조금 달리 투과기간의 마지막 부분(여기서는 단위 면적당 여액의 부피 V가 29 cm)에서 Δt/ΔV값이 증가하는 것을 볼 수 있다. 이는 고분자 물질이 가지는 여과 특징으로 Yim 등¹³⁾에 의해서도 분석된 바 있다. 즉, 직선의 기울기를 가지는 여과부분은 큰

크기의 고분자 응집체가 이에 비해 작은 크기의 세공을 가진 여과매체 위에 케이크를 형성하는 여과가 이루어졌으며, 이후 투과부분에서는 어느 정도 형성된 케이크를 입자제거수가 통과하여 일정한 투과속도를 유지한다. 그러나 어느 정도 시간이 지나면 형성된 케이크 중 여과매체의 세공크기보다 작은 고분자 물질이 투과수와 함께 씻겨 여과매체에 부착되어 투과기간의 Δt/ΔV값을 증가시키는 결과라 볼 수 있다.

5. 결론

여과 현상을 분석하기 위한 새로운 실험방법인 ‘여과-투과 (filtration-permeation)’ 실험을 서로 다른 세 가지 현탁액에 대해 수행하였으며, 이 실험을 통해 얻은 투과 평균 비저항값을 가지고 이론적인 여과과정을 모식화 하였다. 그 결과 다음과 같은 결과를 얻었다.

- 1) 입자 현탁액에 대한 여과-투과 실험결과 초기 현탁액의 농도에 의해 계산하는 전형적인 여과 평균 비저항값은 여과기간 발생하는 침전에 의해 그 값이 상당히 틀릴 수 있음을 여과 도중 침전이 생기는 현탁액과 침전을 배제한 현탁액에 대해 증명해 보였다. 전형적인 여과 방식으로 평균 비저항값을 계산할 경우 잘못된 평균 비저항값을 얻을 수 있으므로 이를 방지하기 위해서는 보통의 여과실험 후 바로 이어지는 짧은 투과기간을 입자제거수로 연장시킨 여과-투과 실험을 통해 얻어진 투과 평균 비저항값을 사용하면 그 오차를 줄일 수 있다는 결론을 얻었다.
- 2) 플럭 여과에서의 여과 평균 비저항값을 계산하기 위하여 벤토나이트 현탁액을 양이온 응집제로 응집 시킨 후 침전된 응집물 현탁액에 대해 여과-투과 실험을 수행하였다. 통상적인 여과방식으로는 케이크 내의 고체분율 S_c값을 계산할 수 없다. 그 결과 정확한 여과 평균 비저항값을 계산할 수 없게 된다. 본 연구에서 사용한 새로운 여과 실험방법인 여과-투과 실험을 수행하면 여과가 종료된 시점에서 형성된 케이크 두께를 정확히 측정할 수 있으며, 이를 가지고 케이크의 부피, 질량 그리고 케이크 내의 고체분율 S_c값을 계산할 수 있다. 따라서 정확한 여과 평균 비저항값을 계산할 수 있게 된다는 결론을 얻었다.
- 3) 고분자 물질의 여과를 위해 양이온 고분자 응집제 용액에 대한 여과-투과 실험을 수행한 결과 여과기간과 투과기간에서 각각 평균 비저항값을 얻을 수 있었다. 실험이 정상적으로 진행될 경우 이 두 값은 실험오차 범위에서 일치한다. 또한 투과기간이 어느 정도 시간이 지나 길게 되면 고분자 물질이 여과매체 내에 부착되어 투과기간의 Δt/ΔV값이 증가하였다.

사 사

이 논문은 인하대학교의 지원에 의하여 연구되었음.

참고문헌

1. D'Arcy, H. P. G., "Les Fontaines Publiques de la Ville de Dijon," Victor Delmont, Paris(1856).
2. Sperry, D. R., "The Principles of Filtration II," *Metalurgical and Chemical Engineering*, **17**(4), 161~166 (1917).
3. Ruth, B. F., Montonna, R. E., and Montillon, G. H., "Comments upon Recent Developments in Theory of Filtration," *Industrial and Engineering Chemistry*, **23**(7), 850(1931).
4. Ruth, B. F., Montillon, G. H., and Montonna, R. E., "Studies in Filtration I. Critical analysis of filtration theory," *Industrial and Engineering Chemistry*, **25**(1), 76~82(1933).
5. Yim, S. S., "A Theoretical and Experimental Study on Cake Filtration with Sedimentation," *Korean J. of Chem. Eng.*, **16**(3), 308~315(1999).
6. 임성삼, 송연민, 전세진, "여과 평균 비저항값의 측정에 대한 고찰: 입자 현탁액과 응집물의 케이크 여과," *한국 화학공학회지*, **40**(3), 330~339(2002).
7. Ruth, B. F., "Correlating Filtration Theory with Industrial Practice," *Industrial and Engineering Chemistry*, **38**(6), 564~571(1946).
8. Okamura, S. and Shirato, M., "Liquid pressure distribution within cakes in the constant pressure filtration," *Kagaku Kogaku(化學工學)*, **19**(3), 104~109(1955).
9. Rietema, K., "Stabilizing effects in compressible filter cakes," *Chem. Eng. Sci.*, **2**, 88~94(1953).
10. Grace, H. P., "Resistance and Compressibility of Filter Cakes. Part I," *Chemical Engineering Progress*, **49**(6), 303~318(1953).
11. Yim, S. S. and Ben Aim, R., "Highly Compressible Cake Filtration : Application to the Filtration of Flocculated Particles," *4th World Filtration Congress*, pp. A1~A7(1986).
12. Tiller, F. M. and Shirato, M., "The Role of Porosity in Filtration VI : New Definition of Filtration Resistance," *AIChE Journal*, **10**(1), 61~67(1964).
13. 임성삼, 송연민, 김도형, "고분자 용액의 여과특성," *한국화학공학회지*, **42**(3), 304~310(2004).